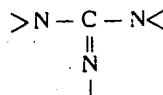


(54) ODORLESS RESIN COMPOSITION

(11) 55-45733 (A) (43) 31.3.1980 (19) JP  
(21) Appl. No. 53-118866 (22) 26.9.1978  
(71) LION YUSHI K.K. (72) HISAKI YAMADA(2)  
(51) Int. Cl<sup>3</sup>. C08L23/00, C08K3/00, C08K5/29, C08K5/42

**PURPOSE:** A resin composition usable for food packaging, without discoloration and bad odor, comprising (A) a resin composition of a polyolefin resin and an inorganic filler, (B) a secondary alkane-sulfonate, and (C) a nitrogen compound of specific skeleton.

**CONSTITUTION:** An odorless resin composition comprising (A) 100 parts by wt. of a resin composition of (a) 20~95wt% of a polyolefin resin and (b) 5~80wt% of an inorganic filler, (B) 0.01~2 parts by wt. of a secondary alkanesulfonate having a 12~20C alkyl group, and (C) 0.01~1 parts by wt. of a nitrogen-containing compound, e.g. dicyandiamide, melamine, or guanidine, having the fundamental skeleton of the formula. Melamine is preferably used due to its stability, availability, and cost.

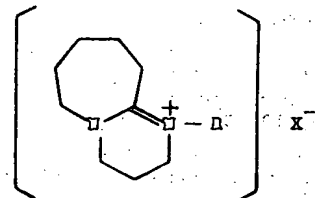


(54) FLUORORUBBER COMPOSITION

(11) 55-45734 (A) (43) 31.3.1980 (19) JP  
(21) Appl. No. 53-118880 (22) 26.9.1978  
(71) DAIKIN KOGYO K.K. (72) YASUYOSHI FURUKAWA  
(51) Int. Cl<sup>3</sup>. C08L27/12, C08K5/13, C08K5/34

**PURPOSE:** The title composition useful as gaskets or sealing compounds, having a small permanent compression set, easily handleable in kneading, comprising (A) a solid solution of an aromatic polyhydroxy compound and a quaternary ammonium compound and (B) a fluororubber.

**CONSTITUTION:** A composition comprising (A) 0.1~10 parts by wt. of a solid solution of (a) an aromatic polyhydroxy compound, e.g. hydroquinone, and (b) a quaternary ammonium compound of the formula (R is 1~24C alkyl or 7~20C aralkyl group; X is anion, e.g. a halide, hydroxylate, alkoxylate, phenoxide, or carbonate), e.g. 8-methyl-1,8-diaza-bicyclo [5.4.0]-7 undecenium chloride, and (B) 100 parts by wt. of a fluororubber, e.g. vinylidene fluoride-hexafluoropropene copolymer. The amount of (b) is 5~400 parts by wt. per 100 parts by wt. of (a).

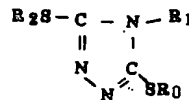
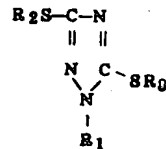


(54) HALOGEN-CONTAINING POLYMER VULCANIZING COMPOSITION

(11) 55-45735 (A) (43) 31.3.1980 (19) JP  
(21) Appl. No. 53-118892 (22) 26.9.1978  
(71) OSAKA SODA K.K. (72) YASUO MATOBA  
(51) Int. Cl<sup>3</sup>. C08L27/00, C08K3/10, C08K5/34

**PURPOSE:** A vulcanizing composition vulcanizable readily and effectively into materials having improved heat and oil resistance, comprising a halogen-containing polymer, 3,5-dimethylmercapto-1,2,4-triazole, and a metallic compound as an acid acceptor.

**CONSTITUTION:** A vulcanizing composition comprising (A) 100 parts by wt. of a halogen-containing polymer, e.g. chlorinated polyethylene or polyvinyl chloride, (B) 0.1~10 parts by wt. of a compound of formula I or II: (R<sub>1</sub> is H, 1~18C alkyl cycloalkyl, alkenyl group, etc.; R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> are H, alkali metal, etc.), e.g. 3,5-dimercapto-1,2,4-triazole, and (C) 0.5~50 parts by wt. of a metallic compound, e.g. an oxide, hydroxide, carbonate of a metal of Group II, or an oxide of basic carbonate of a metal of Group VIa in the periodic table.



⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭55-45734

⑪ Int. Cl.<sup>3</sup>  
C 08 L 27/12  
C 08 K 5/13  
5/34

識別記号  
CAM  
CAM

庁内整理番号  
7019-4 J  
7016-4 J  
7016-4 J

⑬ 公開 昭和55年(1980)3月31日

発明の数 1  
審査請求 未請求

(全 6 頁)

⑭ フッ素ゴム組成物

⑮ 特 願 昭53-118880

⑯ 出 願 昭53(1978)9月26日

⑰ 発 明 者 古川泰義

寝屋川市池田南町9番19号

⑱ 出 願 人 ダイキン工業株式会社

大阪市北区梅田1丁目12番39号

新阪急ビル

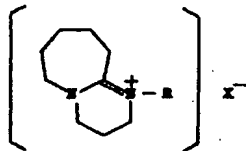
⑲ 代 理 人 弁理士 朝日奈宗太

1 発明の名称

フッ素ゴム組成物

2 特許請求の範囲

- 1 フッ素ゴムに、ポリヒドロキシ芳香族化合物と一般式



(ただし、Rは炭素数1~24個のアシル基または炭素数7~20個のアラルキル基であり、Xはハライド、ヒドロキシレート、アルコキシレート、カーボキシレート、フェノキシイド、スルフォネート、サルフェート、サルファイト、カーボネートなどのアニオンである)

(1)

を有する第4級アンモニウム化合物との固溶体を配合してなることを特徴とするフッ素ゴム組成物。

- 2 さらにポリヒドロキシ芳香族化合物を配合してなる特許請求の範囲第1項記載のフッ素ゴム組成物。

- 3 さらに2価の金属化合物を配合してなる特許請求の範囲第1項または第2項記載のフッ素ゴム組成物。

4 発明の効果を説明

本発明はフッ素ゴム組成物に関する。さらに詳しくは、圧縮時の取扱いが容易であり、しかも引張り強さおよび伸びが大きいゴム性質を何ら損なうことなく圧縮永久ひずみの小さい加硫フッ素ゴムを与えるフッ素ゴム組成物に関する。

ここにフッ素ゴムとは加硫前の高度にフッ素化された弾性体の共重合体を、また加硫フッ素ゴムとは前記フッ素ゴム組成物を加硫して製造

(2)

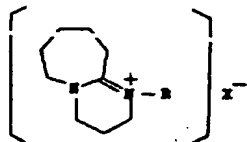
される加硫物をいう。

加硫フッ素ゴムはそのすぐれた耐熱性、耐薬品性、耐候性、耐寒性などのためガスケット、シール材、隔膜、パイプ、その他の分野において広く利用されている。

加硫フッ素ゴムに要求される性質としては、引張り強さや伸びが大きいゴムの性質を有するとともに圧縮永久ひずみの小さいものがその用途上期待されているが、一般に加硫フッ素ゴムはゴムの性質がすぐれていれば圧縮永久ひずみが大きく、一方圧縮永久ひずみが小さければ引張り強さや伸びが小さくゴムの性質が劣るといふ傾向がある。したがってすぐれたゴムの性質を損なうことなく圧縮永久ひずみの小さい加硫フッ素ゴムを与えるフッ素ゴム組成物の開発が強く期待されている。

近時、ゴムの性質にすぐれた圧縮永久ひずみの小さい加硫フッ素ゴム組成物が種々開発されており、たとえばポリビドロキシ芳香族化合物と前記一般式で示される第4級アンモニウム化合物

(5)



(ただし、Rは炭素数1~24個のアルキル基または炭素数7~20個のアラルキル基であり、Xはハライド、ヒドロキシレート、アルコキシレート、カーボキシレート、フェノキシライド、スルフォネート、サルファート、サルファイト、カーボネートなどのアニオンである)

を有する第4級アンモニウム化合物との固溶体を配合してなることを特徴とするフッ素ゴム組成物に関する。

すなわち本発明のフッ素ゴム組成物は、混練り時において前記固溶体がフッ素ゴム中に容易かつ均一に分散され、該固溶体は吸湿性がほとんどないのでその取扱いは混練り操作が容易であり、また処理もしくは加工安定

(5)

特開昭55-45734(2)

物とを含有するフッ素ゴム組成物(たとえば特公開昭52-8845号公報)は前記性質のすぐれた加硫フッ素ゴムを与えることが知られているが、前記第4級アンモニウム化合物はとりわけ吸湿性が大きく、フッ素ゴムの混練り操作上取扱い難く、必ずしも充分なものとはいえない。

しかるに本発明者の研究によれば、前記一般式で示される第4級アンモニウム化合物をポリビドロキシ芳香族化合物と混合して加熱溶融するときはある種の固溶体を形成すること、そしてこの固溶体は吸湿性がほとんどなく、したがって前記の取扱い操作上の欠点が解消されること、さらにこの固溶体を用いてフッ素ゴムを加硫してえられる加硫フッ素ゴムは前記の従来技術のものに比べて、引張り強さ、伸び、圧縮永久ひずみなどの物性が一段と向上せられることを見出し、本発明を完成するにいたつた。

すなわち本発明は、フッ素ゴムにポリビドロキシ芳香族化合物と

一般式

(6)

性がすぐれ、たとえば加硫前の取扱時においてコーキを起しがなく、また1次加硫時の流れ特性も良好で、複雑な形状の成形品でも不良品の発生がなく容易に製作でき、加硫時のバツクリンドも起りにくい。しかもそのうえに本発明の組成物は満足すべき速い加硫速度を与える。さらにまた本発明のフッ素ゴム組成物は従来品に比べ貯蔵安定性がすぐれ、安全に保管できる利点がある。またとくに水またはフッ化水素と反応して容易に水を発生する金属化合物を添加するときには前述の種々の特徴を失なうことなく、加硫速度をさらに一層高めることができる。

また本発明によれば、モジュラス、引張り強さ、伸び、硬さなどのゴムの性質がすぐれ、しかも低温ないしは高温における圧縮永久ひずみのきわめて小さい加硫フッ素ゴムがえられる。したがってたとえば本発明による加硫フッ素ゴムを油圧機器などにおけるパッキング材に使用したばあい密閉を条件下においても、そのすぐれた耐性質、きかんづくゴムの性質および圧縮

(6)



永久に保たれておるので、製薬品におけるように油や空気の染れを防止するための保護を補助的作業をする必要がなく、しかもパッキング材としてのすぐれた効果を発揮する。

本発明において用いるフッ素ゴムとしては、高度にフッ素化された弾性状の共重合体であつて、これらの共重合体としてはたとえばビニリデンフルオライドとその他の含フッ素オレフィンとの共重合体であつて、その代表例としてはビニリデンフルオライドとヘキサフルオロプロペン、ペンタフルオロプロペン、トリフルオロエチレン、トリフルオロクロロエチレン、テトラフルオロエチレン、ビニルフルオライド、パーフルオロ(メチルビニルエーテル)、パーフルオロ(エチルビニルエーテル)、パーフルオロ(プロピルビニルエーテル)などの1種または2種以上との共重合体があげられる。

これらのうちとくに好ましいものは、ビニリデンフルオライド-ヘキサフルオロプロペン2元共重合体およびビニリデンフルオライド-テ

(7)



トラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン3元共重合体である。

またこれら共重合体の各成分に加えて、さらに少量のビニル化合物、オレフィン化合物、ジエン化合物あるいはその他の $\alpha, \beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸などを共重合したものも同様に有効に使用される。

本発明に用いるポリヒドロキシ芳香族化合物としては、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノール-A)、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロパン(ビスフェノール-AF)、レゾルシン、1,5,5-トリヒドロキシベンゼン、1,7-ジヒドロキシナフタレン、2,7-ジヒドロキシナフタレン、1,6-ジヒドロキシナフタレン、4,4'-ジヒドロキシジフェニル、4,4'-ジヒドロキシシスチルベン、2,6-ジヒドロキシアンズラセン、ヒドロキノン、カテコール、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン(ビスフェノール-B)、4,4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムプロマイド、8-プロピル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムプロマイド、8-デシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-デシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムヒドロキサイド、8-エイコシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-テトラコシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-ペンシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-ペンシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムヒドロキサイド、8-アキチル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-(5-フェニルプロピル)-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライドなどが例示される。

(8)



特開昭55-45734(8)

トラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロペン3元共重合体である。

またこれら共重合体の各成分に加えて、さらに少量のビニル化合物、オレフィン化合物、ジエン化合物あるいはその他の $\alpha, \beta$ -エチレン性不飽和カルボン酸などを共重合したものも同様に有効に使用される。

本発明に用いるポリヒドロキシ芳香族化合物としては、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノール-A)、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロパン(ビスフェノール-AF)、レゾルシン、1,5,5-トリヒドロキシベンゼン、1,7-ジヒドロキシナフタレン、2,7-ジヒドロキシナフタレン、1,6-ジヒドロキシナフタレン、4,4'-ジヒドロキシジフェニル、4,4'-ジヒドロキシシスチルベン、2,6-ジヒドロキシアンズラセン、ヒドロキノン、カテコール、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン(ビスフェノール-B)、4,4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムプロマイド、8-プロピル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムプロマイド、8-デシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-デシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムヒドロキサイド、8-エイコシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-テトラコシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-ペンシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-ペンシル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムヒドロキサイド、8-アキチル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-(5-フェニルプロピル)-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライドなどが例示される。

(9)



本発明に用いる第4級アンモニウム化合物としては、8-メチル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド、8-メチル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムアイソグライド、8-メチル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムヒドロキサイド、8-メチル-1,8-ジアザバイシクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウム-メチルサルファート、8-エ

(10)

しかして本発明において加硫剤としてフッ素ゴムに配合されている固溶体は、前記のポリヒドロキシ芳香族化合物と第4級アンモニウム化合物とからえられるが、それぞれの成分を混合して加熱しその両成分が溶化して均一に混合するまで溶融するかまたは攪拌下その両成分を加熱溶融して均一に混合し、ついでこれを冷却することにより容易にえられる。

また前記固溶体を構成する前記両成分の配合割合としては、ポリヒドロキシ芳香族化合物100部（重量部、以下同様）に対して第4級アンモニウム化合物を5～400部をかんづく10～100部とするのが好ましい。第4級アンモニウム化合物の使用量が前記の範囲以下であると一般に形成される固溶体は不均一なものができやすくなり、フッ素ゴム組成物の加硫にいちじるしく長時間を要するようになり、また前記の範囲以上では該固溶体の浸透性が大きくなる傾向があり、いずれも好ましくない。

本発明のフッ素ゴム組成物は、通常フッ素ゴ

09

久ひずみ性が向上せらる。

本発明の方法においては、前記加硫剤の使用のみで充分に前述のすぐれた効果を達成せしめうるが、必要に応じてさらに適宜カーボンブラック、クレイ、強硬土、タルクなどの充填剤や増粘剤を配合することができ、さらに要すれば本発明の趣旨を逸脱しない範囲であれば少量の従来公知の加硫剤の1種または2種以上を配合してもよい。またさらに可塑剤や着色料を添加することもできる。

かくしてえられるフッ素ゴム組成物は常法によつて加硫せられるが、たとえば該組成物をロール間より後金型に入れ加圧して1次加硫し、ついで金型から取出してさらに加熱炉中で2次加硫する方法があげられる。一般に1次加硫の条件は、温度140～180℃、時間5～60分、圧力20～100kg/cm<sup>2</sup>程度の範囲から採用され、また2次加硫の条件は、温度150～260℃、時間0～80時間程度の範囲から採用される。また他の加硫手段として、射出または押出などの予備

09

特開昭55-45734(4)

△100部に対して前記固溶体を0.1～10部、好ましくは0.1～5部の割合で使用するのが好ましい。前記固溶体の使用量が前記の範囲以下であると一般にフッ素ゴム組成物の加硫が不十分となつたり、また前記の範囲以上ではゴムの性質が損なわれやすくなる傾向がある。

本発明においてはさらに2価の金属化合物をフッ素ゴム100部に対して0.5～50部、好ましくは2～20部配合して使用するのが好ましい。前記2価の金属化合物としては、たとえばマグネシウム、カルシウム、鉛、亜鉛などの酸化物または水酸化物またはそれらの混合物が有効なものとしてあげられる。

また本発明においては前記固溶体の形成に用いたポリヒドロキシ芳香族化合物を固溶体とは別途に配合して使用される。かかるポリヒドロキシ芳香族化合物の使用量としては、前記固溶体の使用量にもよるが通常フッ素ゴム100部に対して5部以下、好ましくは5部以下が配合され、これにより加硫フッ素ゴムの耐圧縮永

09

変形をしたものも加硫する方法が採用される。

本発明の方法によつてえられる加硫フッ素ゴムは従来公知の加硫剤を用いてえられたフッ素ゴム製品と同様に耐熱性、耐寒性、耐薬品性がすぐれており、しかも前述のごとき従来法によつてはえられない顕著な効果を奏するので、その工業的、経済的価値はすこぶる大なるものである。

つぎに実施例をあげて本発明のフッ素ゴム組成物を具体的に説明する。

参考例1～8

参考例3～7はポリヒドロキシ芳香族化合物として2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)パーフルオロプロペン（以下、ビスフェノールA7という）を用い、かつ第4級アンモニウム化合物として8-ベンジル-1,8-ジアザバイレクロ(5.4.0)-7-ウンデセニウムクロライド（以下、DBU-3という）を用いて、ビスフェノールA7とDBU-3とを第1表に示した各参考例3～7におけるそれぞれの部数で混合し、両者

09

が均一になるまで150℃で30分間加熱溶解し、ついで得られた物を冷却して各固溶体をえた。なお吸湿性は各例の固溶体をシヤールに入れ、室内にて2日間放置したのも目視により観察した。参考例1～2は前記の化合物をそれぞれ単独でまた参考例3は前記の両化合物を単に混合して、前記同様にして吸湿性を観察した。その結果を第1表に示す。

第 1 表

	参 考 例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
ビスフェノールA	1	—	1	1	1	1	1	1
DBU-3	—	1	0.1	0.25	1	2	4	1
100℃での状態	固体	固体	液体	液体	液体	液体	液体	固体
吸 湿 性	小	大	小	小	小	小	小	大

参考例5～7における本発明に用いる固溶体は、参考例3における前記の両化合物を単に混合したものまたは参考例2におけるDBU-3のみ

調

第 2 表

		実 施 例	比 較 例	
フ ッ 素 ゴ ム 組 成 物	フッ素ゴム	100	100	
	固 溶 体 (注1)	2.5	—	
	ビスフェノール A	—	2	
	DBU-B	—	0.5	
	MA-150 (注2)	5	5	
	メチルメタクリレート	20	20	
	OML-2000 (注3)	6	6	
加 硫 フ ッ 素 ゴ ム の 物 性	常 態	引張り強さ (MPa)	150	120
		伸 び (%)	220	200
		かたさ (H)	72	72
	圧ひずみ 率 (%)	250℃×145時間	8.4	9.4
		200℃×145時間	22.0	25.4

注1：固溶体は、ビスフェノールA 100部とDBU-3 2.5部との割合で固溶体化したもの。

2：MA-150は、共和化学工業(株)製造メタクリレート。

3：OML-2000は、近江化学工業(株)製造メタクリレート。

55

のばあいと比べて、吸湿性がそれぞれ大巾に改善された。

#### 実施例および比較例

第2表に示すように、フッ素ゴムとしてビニリデンフルオリド-ヘキサフルオロプロペン2元共重合体を用い、該共重合体に各種添加剤を順次加えてゴムロール上に於て室温で混練りし、一夜放置して熟成させた。

その後再混練りを行なつて、金型に入れ、温度170℃で50MPaの加圧下に10分間1次加硫を行ないシートおよびブロックを成形した。

ついで成形品を金型から取出し、炉内で温度250℃で24時間2次加硫を行なつた。

このようにしてえられた加硫フッ素ゴムのシートについて引張り強さ、伸びおよびかたさを測定し、一方ブロックについて圧縮永久ひずみを測定した。なおこれらはJIS K 6501に準じた方法により測定し、えられた結果を第2表に示す。

調

前記のごとく、ビスフェノールAとDBU-3とを加熱溶解することなくそれぞれ単独で用いたばあい(比較例)においては混練り時の温度ではそれぞれが固体であつてそれらの分散性がわるいが、前記の両成分の固溶体を用いたばあい(実施例)においては、混練り時の温度(約100℃)においてすでに液体であるので、フッ素ゴムへの混練り時の発熱により固溶体が液化して容易にかつ均一に分散されえた。

また第2表から明らかのごとく、えられた加硫フッ素ゴム組成物はビスフェノールAとDBU-3とを加熱溶解して固溶体とすることなくそれぞれ単独で用いたばあいと比べて、引張り強さや伸びの大きいものがえられ、また圧縮永久ひずみにおいてもすぐれたものがえられた。

以上述べたごとく、本発明においては加硫剤として吸湿性がほとんどなくまた分散性の良好な前記固溶体を用いるので、混練り時および加硫時の取扱いが容易であり、しかもえられる加硫フッ素ゴムは従来技術のものに比べて、引張

高学研  
昭53

り融るや伸びまたは圧縮永久ひずみをどの物性  
が向上され、工業的にきわめて有利である。

特開昭55-45734(6)  
手続補正書(自発)

昭和54年12月25日

特許庁長官 川原 龍雄 殿

1 事件の表示

昭和53年特許願第 116880 号

2 発明の名称

フッ素ゴム組成物

3 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住 所 大阪市北区梅田1丁目12番59号 新阪急ビル

名 称 (285) ダイキン工業株式会社

代表者 山田 雄

4 代 理 人 〒540

住 所 大阪市東区京橋3丁目2番24 北川ビル

氏 名 (6522) 弁理士 朝日奈 奈太

電話 (06) 943-8922 (代)

特許出願人 ダイキン工業株式会社

代理人弁理士 朝日奈 奈太



5 補正の方式

(1) 明細書の「発明の詳細な説明」の欄

6 補正の内容

- (1) 明細書4頁8～9行の「第4級アンモニウム化合物を………加熱溶解」を「第4級アンモニウム化合物とポリヒドロキシ芳香族化合物を通常の方法によつて均一に」と補正する。
- (2) 同11頁4行の「それぞれの成分」を「それぞれの成分を常法により均一状態にすればよく、たとえばその一例として両成分」と補正する。
- (3) 同17頁末行の「酸化カルシウム」を「水酸化カルシウム」と補正する。

以 上